

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Hiromitsu TANAKA, et al.
SERIAL NO: New Application
FILED: Herewith
FOR: ELECTRO LUMINESCENT ELEMENT

GAU:
EXAMINER:



REQUEST FOR PRIORITY

#3
3-1102
DOW

ASSISTANT COMMISSIONER FOR PATENTS
WASHINGTON, D.C. 20231

SIR:

- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number, filed, is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.
- ☐ Full benefit of the filing date of U.S. Provisional Application Serial Number, filed, is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e).
- ☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NUMBER</u>	<u>MONTH/DAY/YEAR</u>
Japan	11-221653	August 4, 1999

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

- ☒ are submitted herewith
- ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee
- ☐ were filed in prior application Serial No. filed
- ☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number .
Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.
- ☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and
(B) Application Serial No.(s)
 - ☐ are submitted herewith
 - ☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.

MARVIN J. SPIVAK

~~REGISTRATION NUMBER 24,913~~

Norman F. Oblon

Registration No. 24,618



22850

Tel. (703) 413-3000
Fax. (703) 413-2220
(OSMMN 10/98)

日 本 国 特 許 庁

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

JC490 U.S. PTO
09/632348
08/03/00

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application: 1 9 9 9 年 8 月 4 日

出 願 番 号

Application Number: 平成 1 1 年特許願第 2 2 1 6 5 3 号

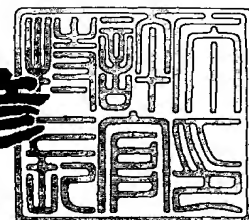
出 願 人

Applicant (s): 株式会社豊田中央研究所

2 0 0 0 年 6 月 2 9 日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Patent Office

近 藤 隆 彦



出証番号 出証特 2 0 0 0 - 3 0 5 0 1 0 9

【書類名】 特許願

【整理番号】 TC1-0387

【提出日】 平成11年 8月 4日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C09K 11/06

【発明の名称】 電界発光素子

【請求項の数】 2

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道4 1 番地の1 株
式会社豊田中央研究所内

【氏名】 田中 洋充

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道4 1 番地の1 株
式会社豊田中央研究所内

【氏名】 毛利 誠

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道4 1 番地の1 株
式会社豊田中央研究所内

【氏名】 竹内 久人

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道4 1 番地の1 株
式会社豊田中央研究所内

【氏名】 時任 静士

【特許出願人】

【識別番号】 000003609

【氏名又は名称】 株式会社豊田中央研究所

【代理人】

【識別番号】 100075258

【弁理士】

【氏名又は名称】 吉田 研二

【電話番号】 0422-21-2340

【選任した代理人】

【識別番号】 100081503

【弁理士】

【氏名又は名称】 金山 敏彦

【電話番号】 0422-21-2340

【選任した代理人】

【識別番号】 100096976

【弁理士】

【氏名又は名称】 石田 純

【電話番号】 0422-21-2340

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 001753

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

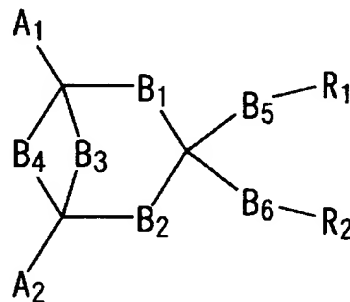
【発明の名称】 電界発光素子

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 電極間に一層または複数層の有機化合物層を備える電界発光素子であって、

前記有機化合物層のうち少なくとも一層が、下記化学式で示される縮合環化合物誘導体であることを特徴とする電界発光素子。

【化 1】

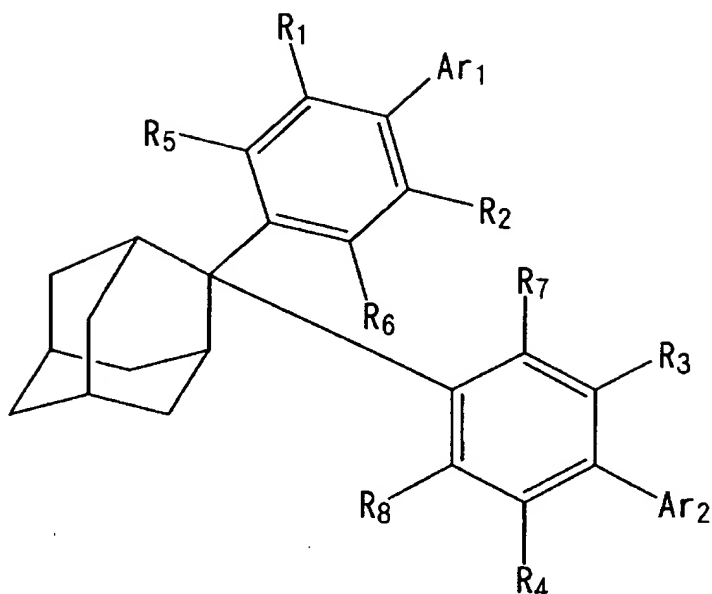


ここで、A1、A2は置換基、B1～B6は直接結合しているかまたは2官能性の置換基、R1、R2はトリフェニルアミン、クマリン、オキサジアゾール誘導体等の正孔輸送性、発光性、電子輸送性の各機能を有する機能単位。

【請求項 2】 電極間に一層または複数層の有機化合物層を備える電界発光素子であって、

前記有機化合物層のうち少なくとも一層が、下記化学式で示されるアダマンタン誘導体であることを特徴とする電界発光素子。

【化 2】



ここで、R1～R8は置換基、Ar1、Ar2は正孔輸送性、発光性、電子輸送性の各機能を有する機能単位。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は電界発光素子、特に電界発光素子に用いられる有機化合物材料の改良に関する。

【0002】

【従来の技術】

電界発光素子は、ガラス基板上に、透明第一電極（例えばITO）と、強い蛍光を持つ有機化合物を含む有機化合物層と、金属（例えばMg）の第二電極とが順に積層されて構成されている。上記有機化合物層は例えば正孔輸送機能分子と発光機能分子と電子輸送機能分子とが順に積層されてなり、上記一对の電極へ電界を印加することにより発光する。すなわち、第一電極から正孔を、第二電極から電子を注入すると、注入された正孔と電子とが上記有機化合物層内を移動し、衝突、再結合を起こして消滅する。この再結合により発生したエネルギーは発光性分子が励起状態を生成するのに使われ、これによって素子が蛍光を発する。

【0003】

このような電界発光素子は、視野角の制限が無く、また低電圧駆動、高速応答

が可能であり、液晶、プラズマディスプレイ、無機電界発光素子といった他の表示素子と比較して、ディスプレイとして優れた特性を持っている。

【 0 0 0 4 】

有機電界発光素子の正孔輸送機能材料として、Tang等によって提案された材料であるTPD（テトラフェニルベンジジン）が広く使用されている。TPDは、優れたホール輸送性を有しているため、TPDを正孔輸送機能分子として用いた有機電界発光素子、例えば、[ITO/ TPD(60nm)/ Alq3(60nm)/ Mg:Ag(1500nm)]の構成を有する素子の場合、数万 cd/m^2 の最大輝度を有する優れた初期性能を発揮する。

【 0 0 0 5 】

また、PBD（*t*-ブチルピフェニルフェニルオキサジアゾール）は、筒井らによって提案された電子輸送性材料である。PBDは、高い電子輸送性を有する材料であると同時に、高輝度の青色発光材料である。

【 0 0 0 6 】

【発明が解決しようとする課題】

しかし、上記従来の正孔輸送性、発光性、電子輸送性の各機能性分子は、優れた電子機能特性を有していても結晶性が高く、耐熱性が低いという問題があり、有機電界発光素子の材料として使用することができない材料が多いという問題があった。例えば、TPD（テトラフェニルベンジジン）やトリフェニルアミンは優れたホール輸送性を有する材料であるが、結晶性が高く、耐熱性も低い材料であるため、素子作成後一ヶ月以内に結晶化を起こし、素子破壊を引き起こす。また、PBD（*t*-ブチルピフェニルフェニルオキサジアゾール）は、優れた電子輸送性を有する材料であるが、結晶化の速度が速く、製膜後、1週間以内に結晶化による素子の破壊を引き起こす。

【 0 0 0 7 】

本発明は、上記従来の課題に鑑みなされたものであり、その目的は、高耐熱性、低結晶性が付与された正孔輸送性、発光性、電子輸送性の各機能性分子を使用した電界発光素子を提供することにある。

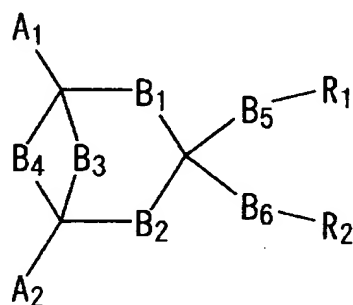
【0008】

【課題を解決するための手段】

上記目的を達成するために、本願の第1の発明は、電極間に一層または複数層の有機化合物層を備える電界発光素子であって、この有機化合物層のうち少なくとも一層が、下記化学式で示される縮合環化合物誘導体であることを特徴とする。

【0009】

【化3】



ここで、A1、A2は置換基、B1～B6は直接結合しているかまたは2官能性の置換基、R1、R2はトリフェニルアミン、クマリン、オキサジアゾール誘導体等の正孔輸送性、発光性、電子輸送性の各機能を有する機能単位。

【0010】

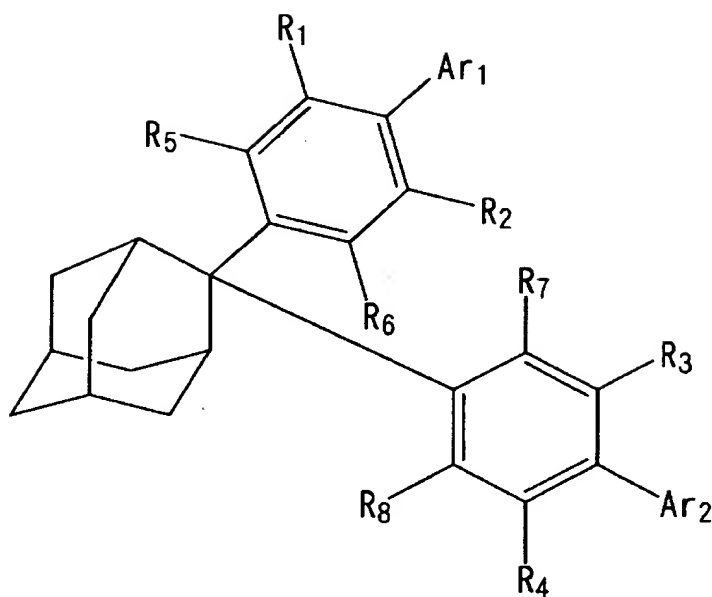
上記構成によれば、正孔輸送性、発光性、電子輸送性の各機能性分子を縮合環化合物誘導体化することにより、優れた電子特性を持ちながら、有機電界発光素子材料として好ましい低結晶性、高耐熱性を付与できる。これは、縮合環化合物誘導体化することにより、分子が非平面構造となり、かつ分子の形状の対称性が低下するので、分子の結晶性が低下するとともに、剛直な縮合環化合物の分子骨格を導入して分子の運動性を低下させることができ、耐熱性が向上するからである。

【0011】

また、本願の第2の発明は、電極間に一層または複数層の有機化合物層を備える電界発光素子であって、この有機化合物層のうち少なくとも一層が、下記化学式で示されるアダマンタン誘導体であることを特徴とする。

【0012】

【化4】



ここで、R1～R8は置換基、Ar1、Ar2は正孔輸送性、発光性、電子輸送性の各機能を有する機能単位。

【0013】

上記構成によれば、有機化合物層がアダマンタン誘導体を基本骨格とする化合物となっているが、このアダマンタン誘導体は、剛直で、耐熱性に優れた分子である。また、R1～R8に置換基を導入することによって、アダマンタンとベンゼン環、ベンゼン環と置換分子の結合軸のまわりの回転が抑制され、分子の運動性が低下して置換基が無い場合と比較して耐熱性、耐久性が向上する。

【0014】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態（以下実施形態という）を、図面に従って説明する。

【0015】

実施形態1.

図1には、本実施形態に係る電界発光素子の概略構造の断面図が示される。図1において、電界発光素子は、透明基板10上に陽極である第1電極12と、電界の印加により発光する有機化合物層14と、陰極である第2電極16とが順に

積層されて構成されている。

【0016】

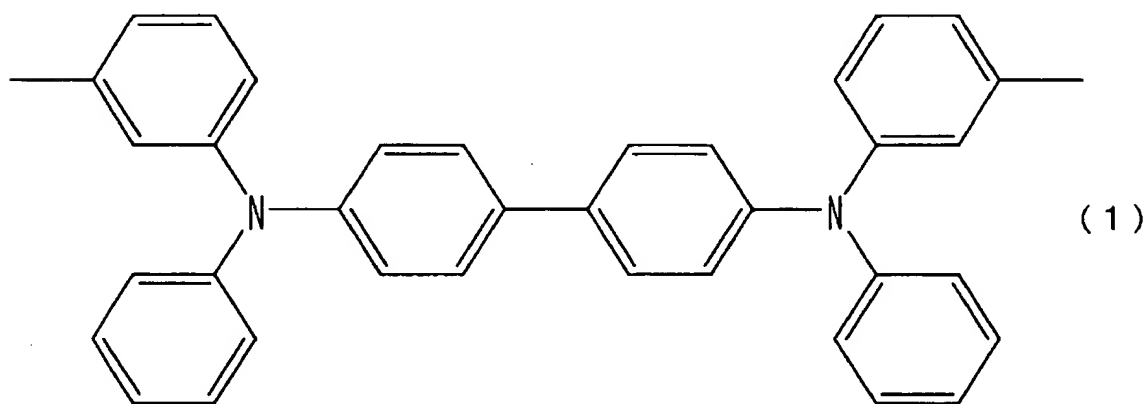
透明基板 10 としては、ガラス基板、透明セラミックス基板、ダイヤモンド基板等を用いることができるが、とくに限定されない。また、第 1 電極 12 としては、高い光透過性及び導電性を有する透明電極が用いられ、例えば、ITO(インジウム酸化物)、 SnO_2 、 InO_3 、ポリアニリン等の薄膜材料を用いることができる。さらに、第 2 電極 16 としては、Li、B、Be、Na、Mg、Al、K、Ca、Ag等のイオン化ポテンシャルの小さい金属あるいはそれらを含んだ合金、MgAg、LiAl、LiF/Al等を用いることができる。

【0017】

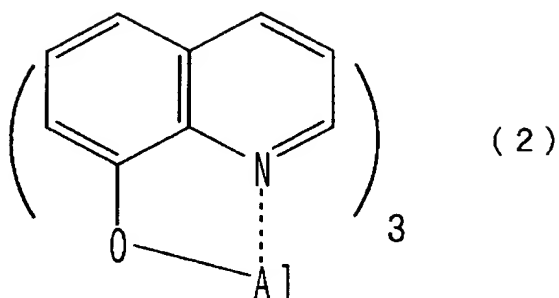
有機化合物層 14 は、上記第 1 電極 12 と第 2 電極 16 との間に設けられ、主として有機化合物よりなる均一な膜厚の薄膜(数十から数千nm)である。この有機化合物層 14 には、縮合環化合物誘導体の層が含まれるか、あるいはホストとなる物質に縮合環化合物誘導体が分散された物が有機化合物層 14 にさらに分散された構造となっている。上記ホストとなる物質としては、例えば下記(1)で示されるTPDあるいは(2)で示される Alq_3 等がある。

【0018】

【化 5】



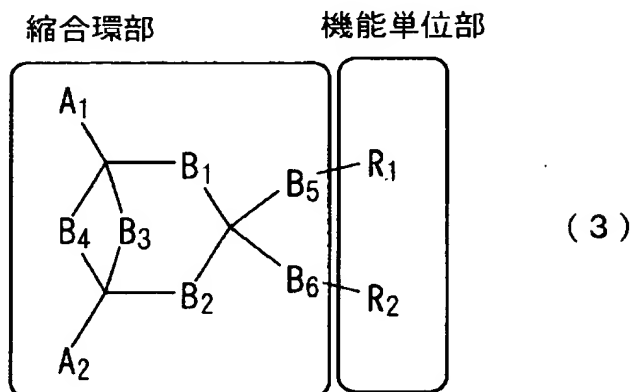
【化 6】



ここで、縮合環化合物誘導体とは、下記の一般式(3)で表される化合物である。

【0019】

【化7】



またここでA1、A2は置換基を表す。置換基は、例えば、アルキル基、アリール基、アリル基、アルケン基、アルキン基、アルコキシ基、ヒドロキシ基、ヒドロキシシル基、ヒドロキシレート基、チオカルボキシ基、ジチオカルボキシ基、スルホ基、スルフィノ基、スルフェノ基、オキシカルボニル基、ハロホルミル基、カルバモイル基、ヒドラジノカルボニル基、アミジノ基、シアノ基、イソシアン基、シアナト基、イソシアナト基、チオシアナト基、イソチオシアナト基、ホルミル基、オキソ基、チオホルミル基、チオキソ基、メルカプト基、アミノ基、イミノ基、ヒドラジノ基、アリロキシ基、スルフィド基、ハロゲン基、ニトロ基、シリル基等を含む官能基で置換されていても良い。

【0020】

B1～B6は、直接結合か2官能性の置換基を表し、例えば、アルキル基、アリー

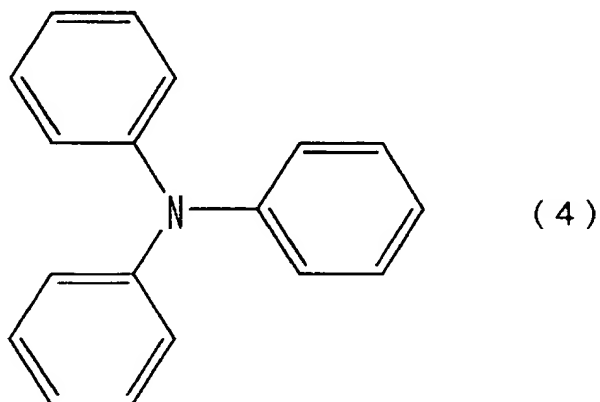
ル基、アリル基、アルケン基、アルキン基、アルコキシ基、ヒドロキシ基、ヒドロキシル基、ヒドロキシレート基、チオカルボキシ基、ジチオカルボキシ基、スルホ基、スルフィノ基、スルフェノ基、オキシカルボニル基、ハロホルミル基、カルバモイル基、ヒドラジノカルボニル基、アミジノ基、シアノ基、イソシアニ基、シアナト基、イソシアナト基、チオシアナト基、イソチオシアナト基、ホルミル基、オキソ基、チオホルミル基、チオキソ基、メルカプト基、アミノ基、イミノ基、ヒドラジノ基、アリロキシ基、スルフィド基、ハロゲン基、ニトロ基、シリル基、等を含む構成要素から構成される置換基である。

【0021】

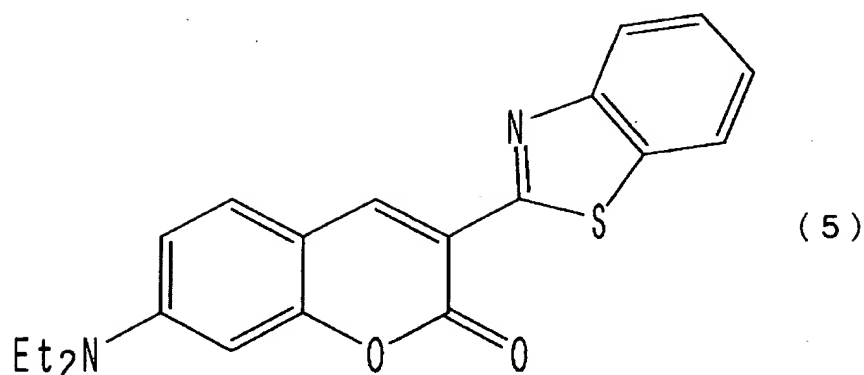
R1～R2は、正孔輸送性、発光性、電子輸送性の各機能を有する機能単位であり、例えば、正孔輸送性を有するものとして下記（４）で示されるトリフェニルアミン、発光性を有するものとして下記（５）で示されるクマリン、電子輸送性を有するものとして下記（６）で示されるオキサジアゾール誘導体等が挙げられるが、正孔輸送性、発光性、電子輸送性功能を有する機能単位であればこれらに限定されるものではない。

【0022】

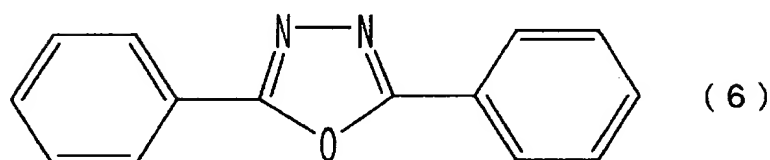
【化 8】



【化 9】



【化 1 0】



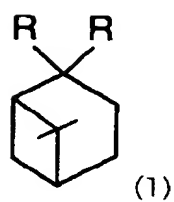
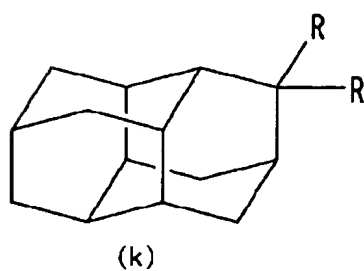
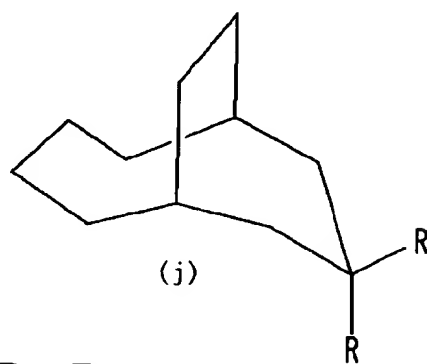
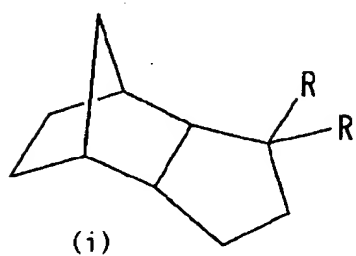
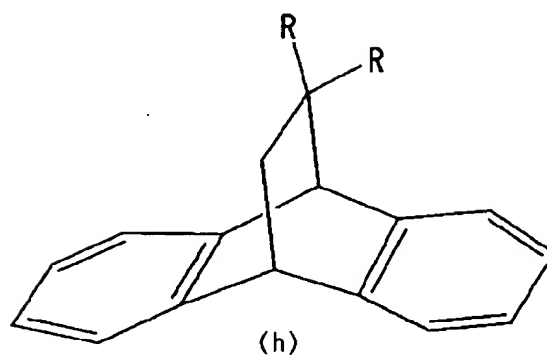
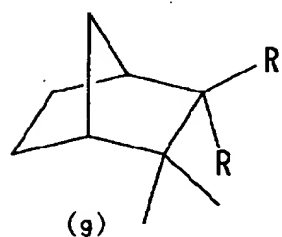
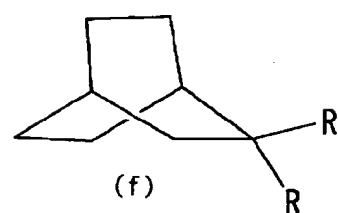
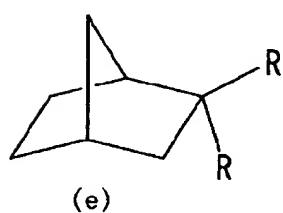
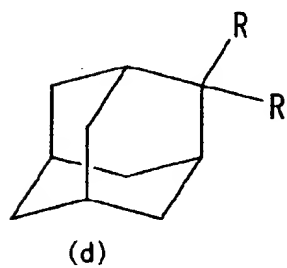
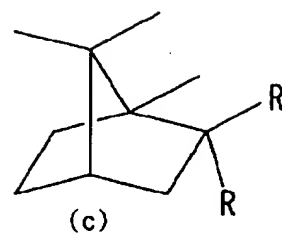
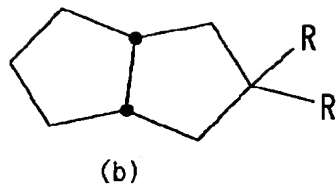
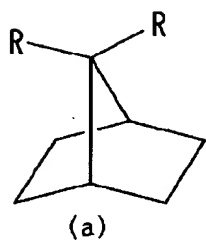
また、B1からB4、R1、R2、A1、A2の間は直接結合しているかあるいは互いに連結した芳香環あるいは鎖状化合物で連結していても良く、その連結部は上記官能基のいずれかを含んでいても良い。

【0 0 2 3】

以上のような縮合環化合物誘導体の具体例をあげれば、以下の化学式 (a) ~ (1) で示される化合物がある。ただし、これらの例では、上記機能単位R1、R2はRで示されている。

【 0 0 2 4 】

【 化 1 1 】

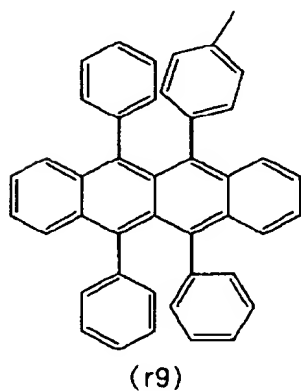
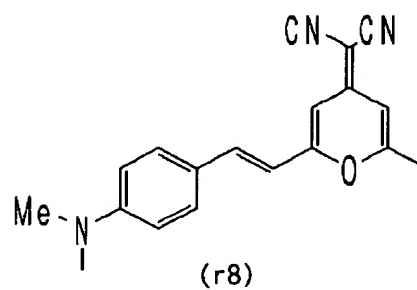
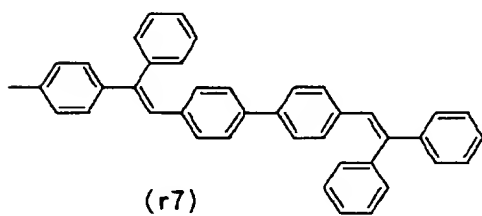
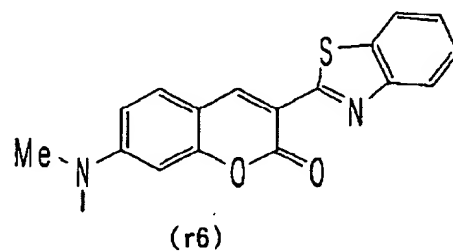
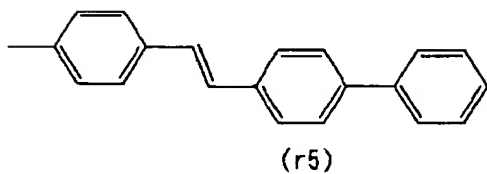
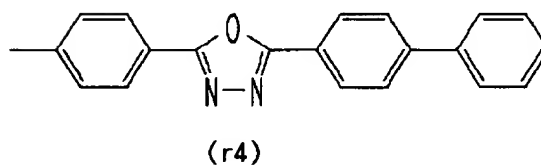
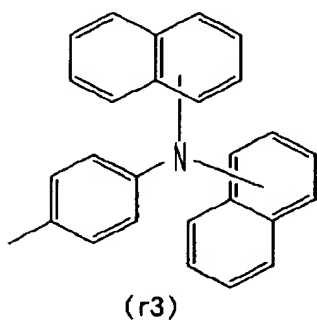
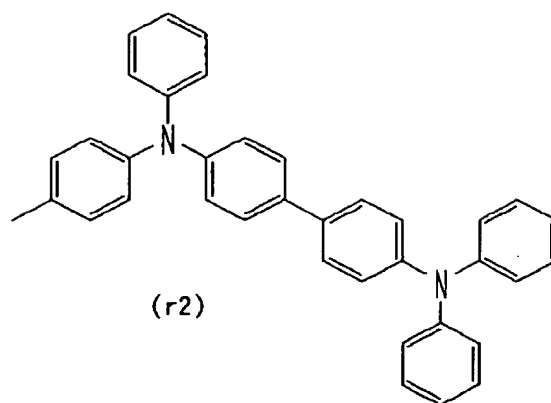
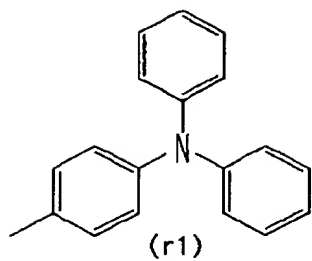


また、上記機能単位R1、R2の具体例をあげれば、以下の化学式 (r 1) ~ (r

9) で示される化合物がある。

【0025】

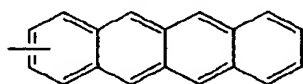
【化 1 2】



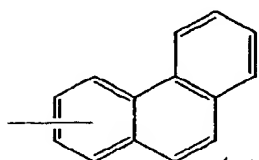
さらに、上記機能単位R1、R2としては、以下の化学式 (r 1 0) ~ (r 2 2) で示される化合物でもよい。

【0 0 2 6】

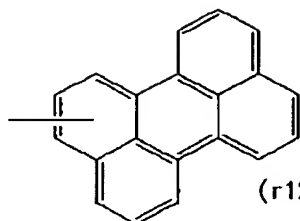
【化 1 3】



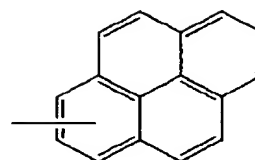
(r10)



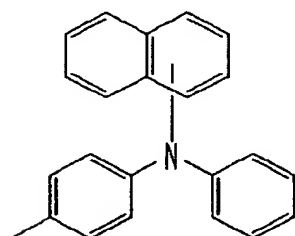
(r11)



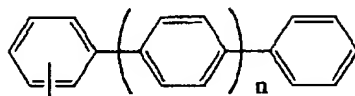
(r12)



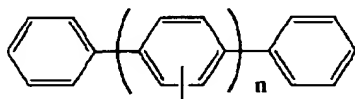
(r13)



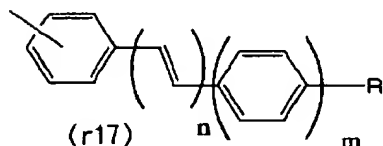
(r14)



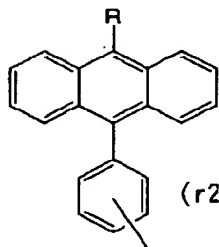
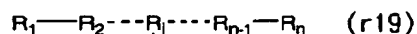
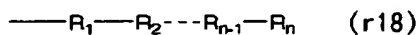
(r15)



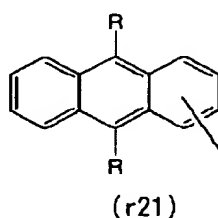
(r16)



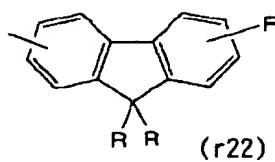
(r17)



(r20)



(r21)



(r22)

ここで

n,m,i=整数

R=C1-C30の飽和炭化水素及びその異性体

フェニル、ナフチル、インデニル、フルオレニル、フェナントリル、アントラニル、ピレニル、クリセニル、ナフタセニル、ベンゾフェナントレニル、フラニル、チオフェニル、ピロリル、オキサゾリル、イソオキサゾリル、ピラゾリル、トリアゾリル、フラザリル、ピリジル、オキサジル、モルホリル、チアジル、ピリダジル、ピリミジル、ピラジル、トリアジル、ベンゾフリル、イソベンゾフリル、ベンゾチオフェニル、インドリル、イソインドリル、ベンゾオキサゾリル、ベンゾチアゾリル、ベンゾイミダゾリル、クロメルル、キノリル、イソキノリル、シンノリル、フタラジル、キナゾリル、キノキサリル、ジベンゾフリル、カルバゾリル、キサンテニル、アクリジニル、フェナントリジニル、フェナントリル、フェナジニル、フェノキサジニル、チアントレニル、インドリジニル、キノリジニル、ナフチリジニル、プリニル、プリテジニル、オキサジアゾリル、オキサチアゾリル、
>C=C<,>C=N<,-N=N<,-N(R)<,-O<,-S<,-SO<,-SO2<,-Si(R2)<,->C=Si<,-C≡C<,-B(R)-

正孔輸送性、発光性、電子輸送性機能性分子は、一般に平面で、対称性の良い形態であるために結晶性が高く、熱により容易に準安定な非晶状態から結晶状態に転移する。そこで、本実施形態のように、これら化合物を縮合環化合物誘導体化することにより、分子を非平面構造とし、かつ分子の形状の対称性を低下させる。これにより、分子の結晶性を低下させることができる。また一方、縮合環化合物誘導体化することで、剛直な縮合環化合物の分子骨格を導入して分子の運動性を低下させることができ、耐熱性も向上する。

【0027】

このように、正孔輸送性、発光性、電子輸送性の各機能性分子を縮合環化合物誘導体化することにより、優れた電子特性を持ちながら、有機電界発光素子材料として好ましい低結晶性、高耐熱性を付与できる。

【0028】

実施形態2.

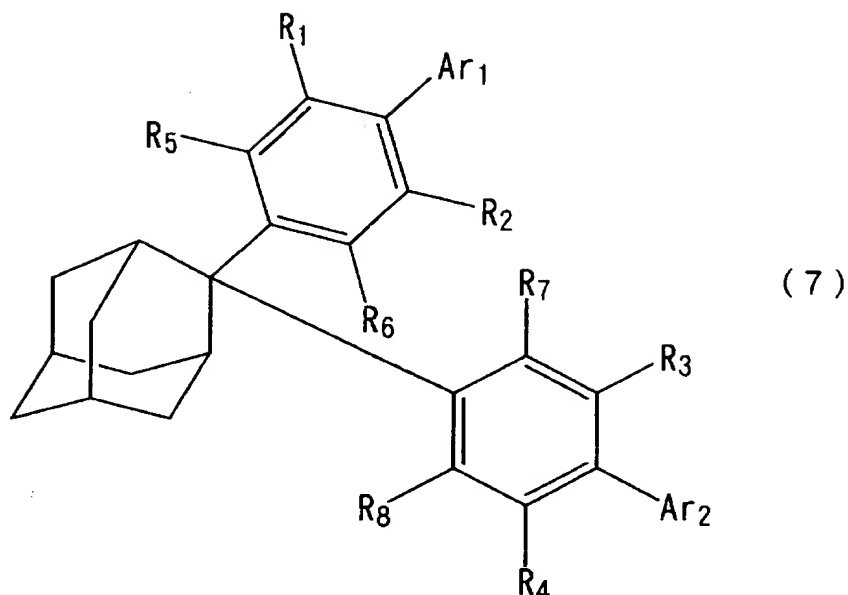
本実施形態では、図1に示された電界発光素子の有機化合物層14には、アダマンタン誘導体の層が含まれるか、あるいはホストとなる物質にアダマンタン誘導体が分散された物が有機化合物層14にさらに分散された構造となっている。上記ホストとなる物質としては、例えば前述の(1)で示されるTPDあるいは(2)で示されるAlq₃等がある。

【0029】

ここで、アダマンタン誘導体とは、下記の一般式(7)で表される化合物である。

【0030】

【化14】



またここで、Ar1～Ar2は置換基であり、正孔輸送機能性、発光機能性、電子輸送機能性化合物よりなる。置換基は、フェニル、ナフチル、フェナントリル等のアリル骨格を基本の骨格とするものである。これら置換基は、更に置換されていても良く、例えば、アルキル基、アリール基、アリル基、アルケン基、アルキン基、アルコキシ基、ヒドロキシ基、ヒドロキシシル基、ヒドロキシレート基、チオカルボキシ基、ジチオカルボキシ基、スルホ基、スルフィノ基、スルフェノ基、オキシカルボニル基、ハロホルミル基、カルバモイル基、ヒドラジノカルボニル基、アミジノ基、シアノ基、イソシアン基、シアナト基、イソシアナト基、チオシアナト基、イソチオシアナト基、ホルミル基、オキシ基、チオホルミル基、チオキシ基、メルカプト基、アミノ基、イミノ基、ヒドラジノ基、アルコキシ基、アリロキシ基、スルフィド基、ハロゲン基、ニトロ基、シリル基等を含む官能基で置換されていても良い。

【0031】

R1～R8は、置換基を表し、例えば、アルキル基、アリール基、アリル基、アルケン基、アルキン基、アルコキシ基、ヒドロキシ基、ヒドロキシシル基、ヒドロキシレート基、チオカルボキシ基、ジチオカルボキシ基、スルホ基、スルフィノ

基、スルフェノ基、オキシカルボニル基、ハロホルミル基、カルバモイル基、ヒドラジノカルボニル基、アミジノ基、シアノ基、イソシアン基、シアナト基、イソシアナト基、チオシアナト基、イソチオシアナト基、ホルミル基、オキソ基、チオホルミル基、チオキソ基、メルカプト基、アミノ基、イミノ基、ヒドラジノ基、アルコキシ基、アリロキシ基、スルフィド基、ハロゲン基、ニトロ基、シリル基等を含む官能基である。

【0032】

また、Ar1とAr2の間及びR1からR8の相互間は、互いに直接結合あるいは二官能性置換基で連結していても良く、その連結部は上記官能基のいずれかを含んでいても良い。

【0033】

本実施形態に係る化合物は、上述の通り、アダマンタン誘導体を基本骨格とする化合物である。

【0034】

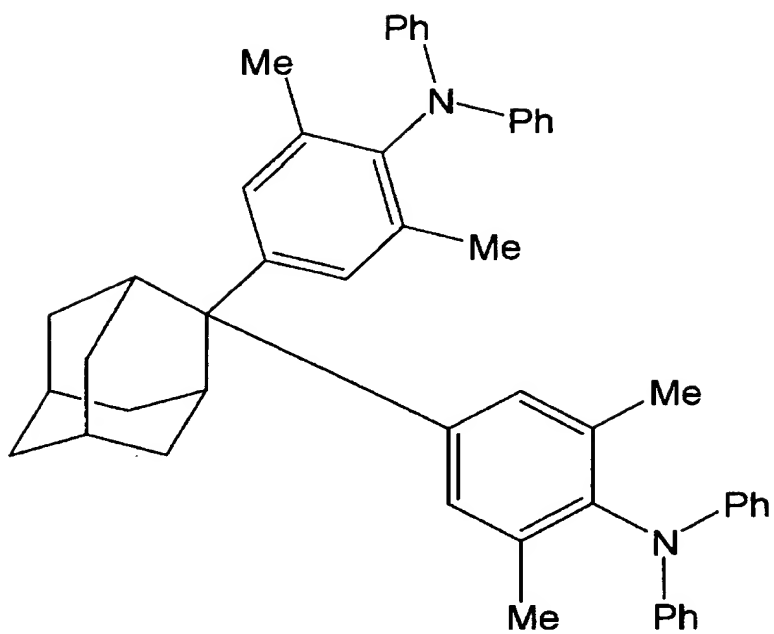
アダマンタン骨格は、200℃以上で安定に昇華できることからわかるように、剛直で、耐熱性に優れた分子である。本実施形態のアダマンタン誘導体は、アダマンタン骨格を分子内に架橋点として有している。このため、分子が剛直に固定され、優れた耐熱性を有する分子となる。

【0035】

また、R1～R8に置換基を導入することによって、置換基が無い場合と比較して耐熱性、耐久性が向上する。置換基の導入によって、アダマンタンとベンゼン環、ベンゼン環と置換分子の結合軸のまわりの回転が抑制されることにより分子の運動性が低下し、耐熱性が向上する。置換基としては、以下の(8)、(9)に示されるように、メチル基程度の大きさの置換基で十分に効果があるが、(10)に示されるように、さらに嵩高い置換基(t-Bu、トリフェニルシリル基等)を導入すれば、耐熱性向上に更に有効である。

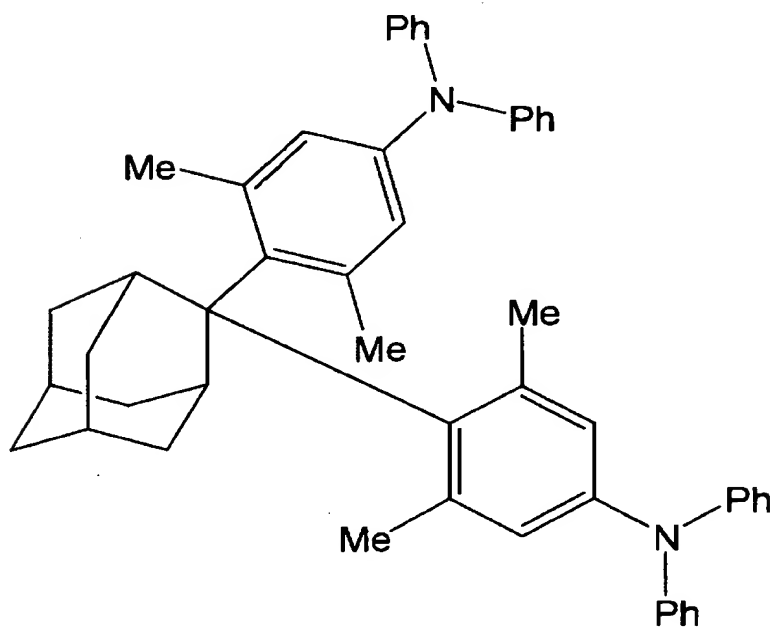
【0036】

【化15】



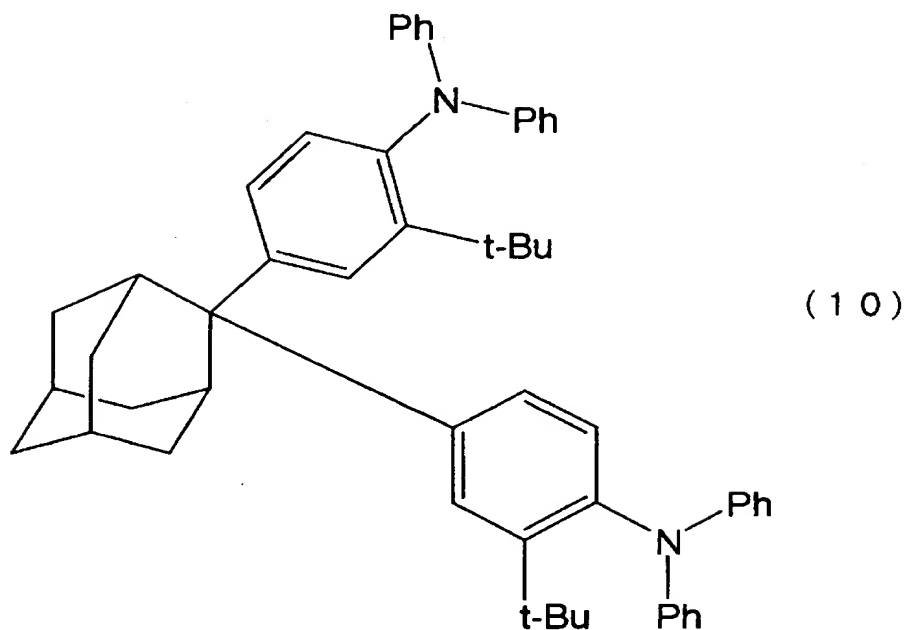
(8)

【化 1 6】



(9)

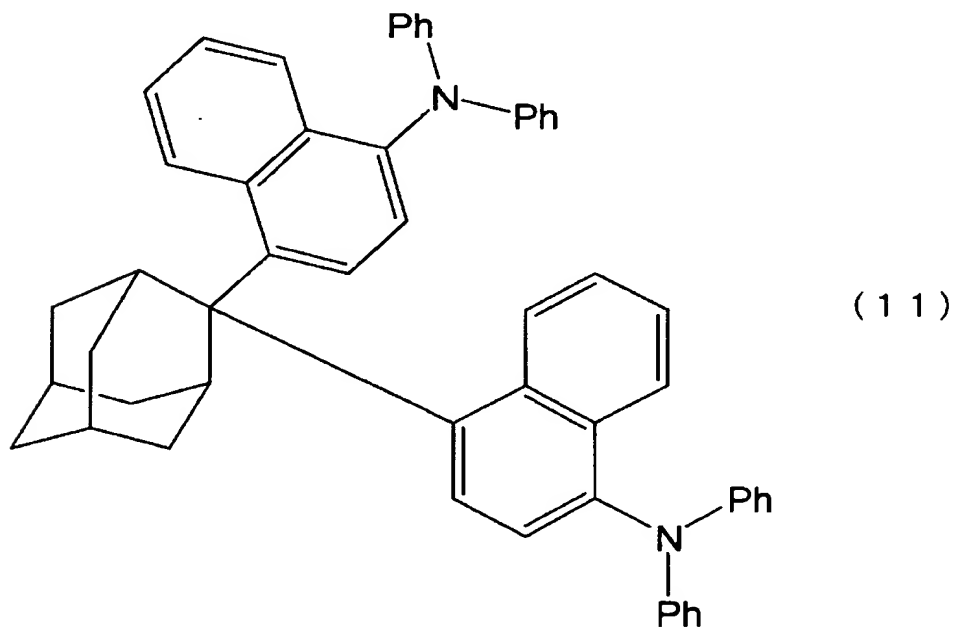
【化 1 7】



また、以下の(11)に示されるように、ベンゼン環部がナフタレン環となった化合物も同様に回転が抑制され、無置換の場合と比較して耐熱性が向上する。

【0037】

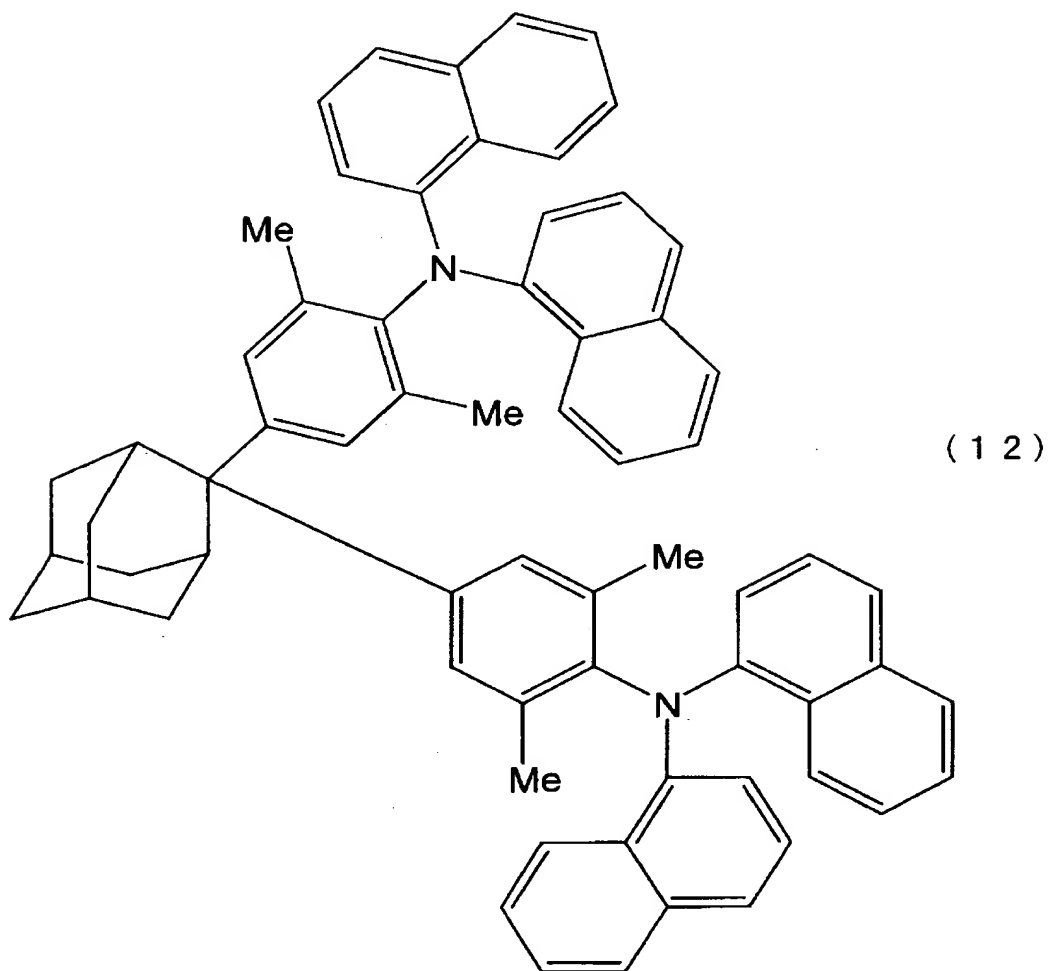
【化18】



また、以下の(12)、(13)に示されるように、Ar1~Ar2の基本骨格をジ

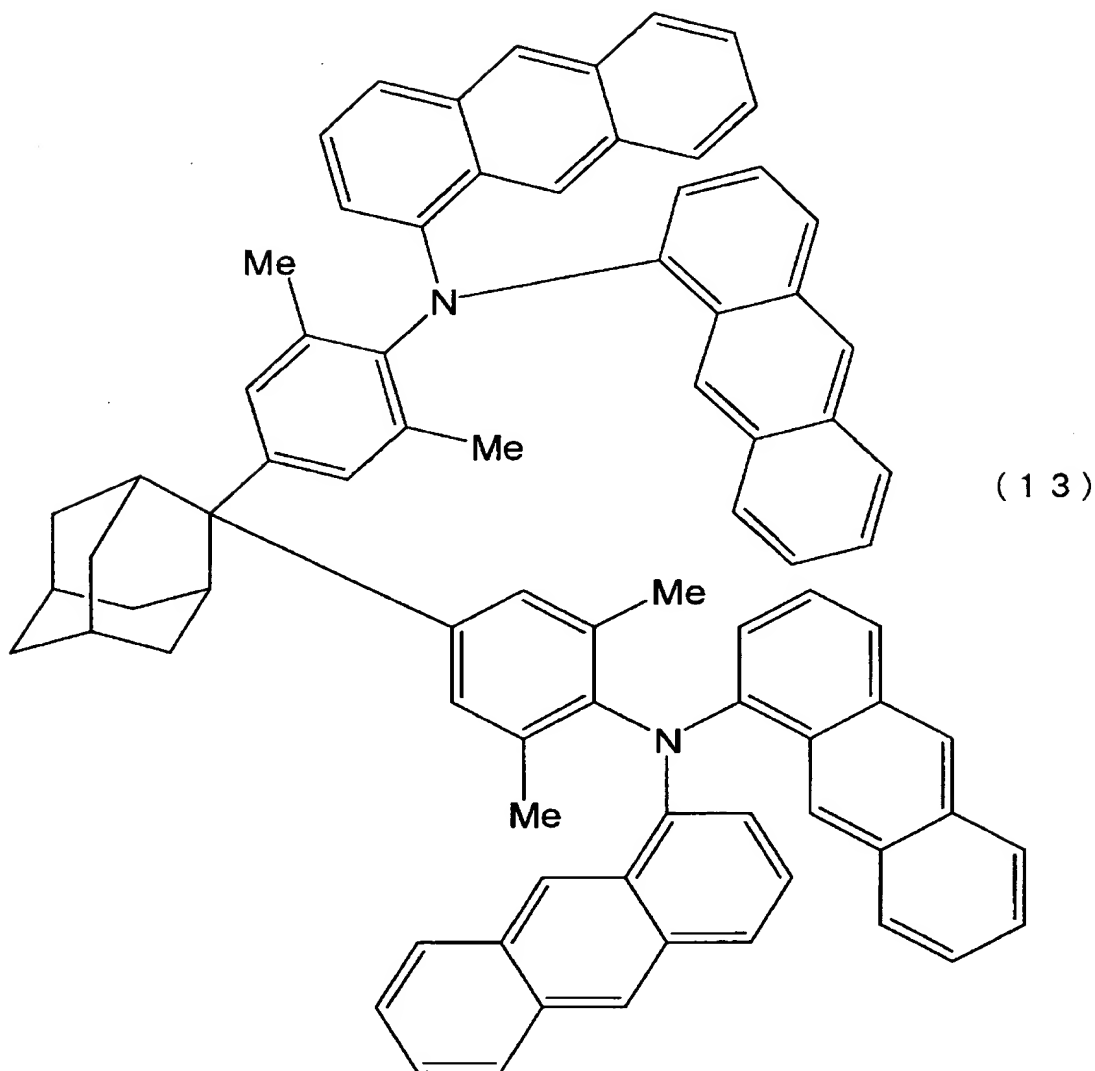
フェニルアミンからジナフチルアミン

【化 19】



ジアントラニルアミン

【化 20】



等に縮合度を増してゆくにつれて、正孔輸送材料としてのイオン化ポテンシャルが減少し、透明電極からの正孔の注入がしやすくなって、電界発光素子の発光の効率が向上すると共に、分子の回転が抑制され、耐熱性向上に有効である。

【0038】

これらの化合物は、一般的にはアダマンタンアミン化合物と芳香族ハロゲン化物とのカップリング反応、あるいはアダマンタンハロゲン化物あるいはアダマンタンボレート、アダマンタンエーテル、アダマンタンエステルと芳香族アミン化合物とのカップリング反応で合成できるが、特にこれらに限定されるものではない。

【0039】

【実施例】

以下に、アダマンタン誘導体を合成し、これを使用して電界発光素子を作製し、その性能評価を行った結果を実施例として比較例とともに示す。

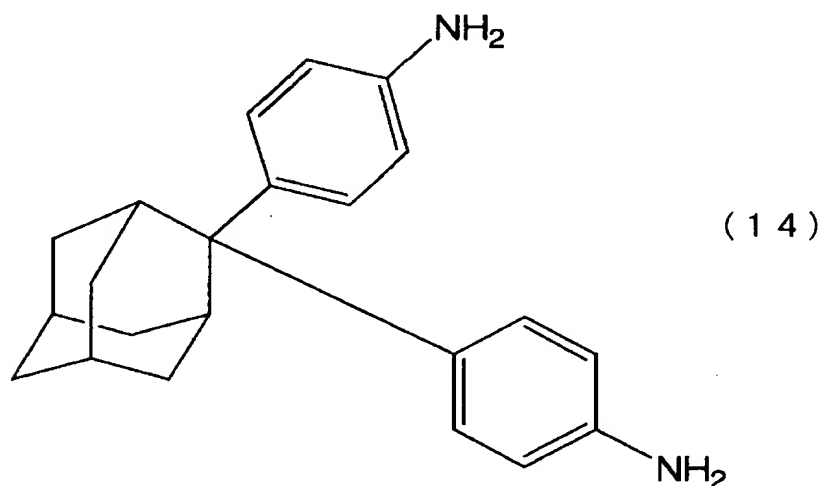
【0040】

【実施例1】 ジアニリノアダマンタン（14）の合成

2-アダマンタノン13 g、アニリン55 g、アニリン塩酸塩15 gの混合物を水分除去器を付したフラスコに入れ、200℃（油浴）、窒素雰囲気下で加熱還流した。40時間後、KOH水溶液を加え、pHを約10とした後、クロロホルムで抽出、水洗した。硫酸ナトリウムで乾燥、エバポレーション後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、無色のアモルファス様物質として5 gのジアニリノアダマンタンを得た。

【0041】

【化21】



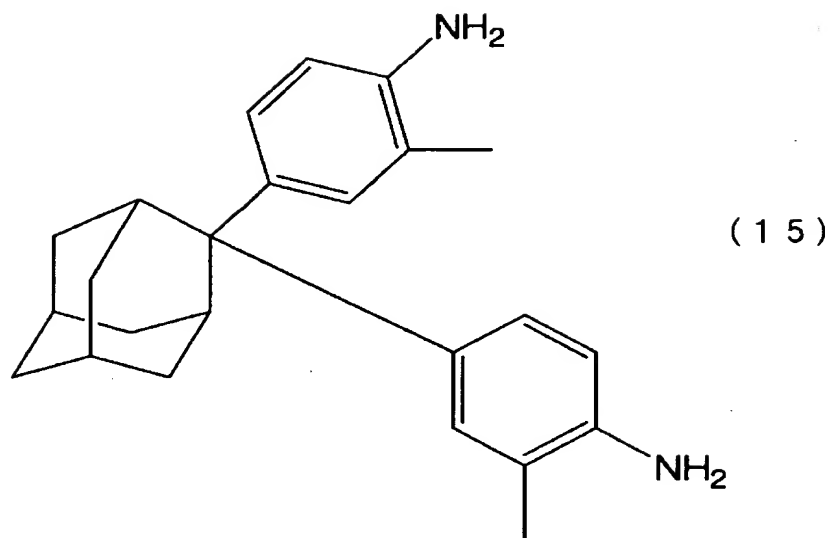
【実施例2】 ジトルイジノアダマンタン（15）の合成

2-アダマンタノン13 g、*o*-トルイジン60 g、*o*-トルイジン塩酸塩18 gの混合物を水分除去器を付したフラスコに入れ、250℃（油浴）、窒素雰囲気下で加熱還流した。60時間後、KOH水溶液を加え、pHを約10とした後、クロロホルムで抽出、水洗した。硫酸ナトリウムで乾燥、エバポレーション後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色固体として4.2 gのジトルイジノア

ダマンタンを得た。

【0042】

【化22】

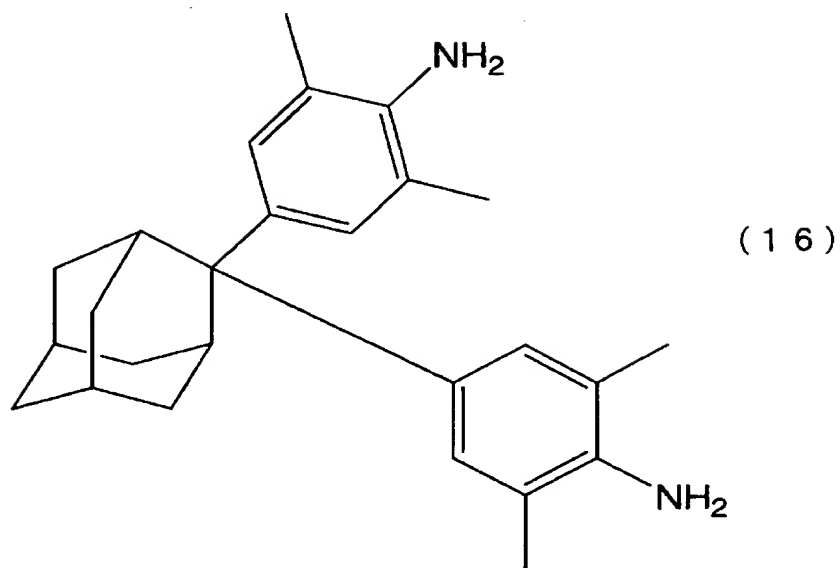


【実施例3】ジジメチルアニリノアダマンタン（16）の合成

2-アダマンタノン13g、2、6-ジメチルアニリン63g、2、6-ジメチルアニリン塩酸塩20gの混合物を水分除去器を付したフラスコに入れ、250℃（油浴）、窒素雰囲気下で加熱還流した。80時間後、KOH水溶液を加え、pHを約10とした後、クロロホルムで抽出、水洗した。硫酸ナトリウムで乾燥、エバポレーション後、シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製し、白色固体として6.5gのジジメチルアニリノアダマンタンを得た。

【0043】

【化23】

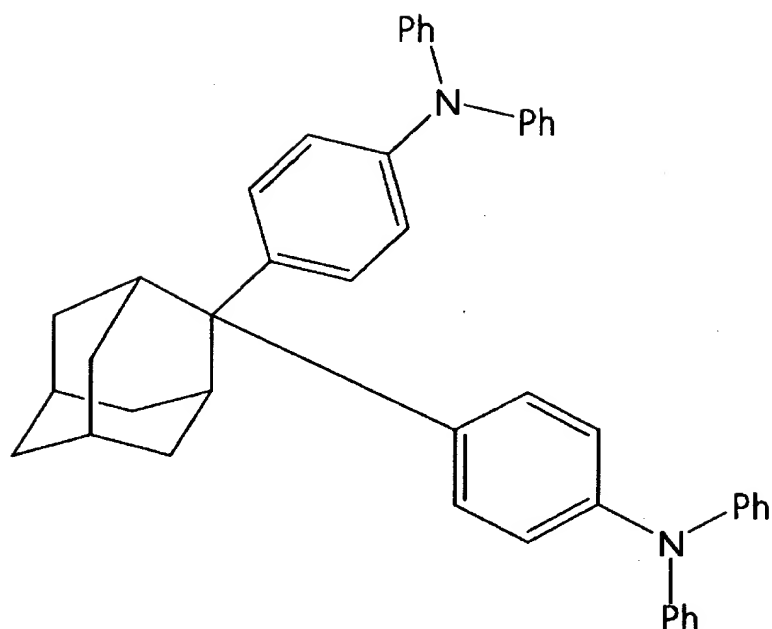


【実施例4】正孔輸送機能分子（17）の合成

ジアニリノアダマンタン（化10）252mg、ヨードベンゼン1.0g、炭酸カリウム1.1g、銅粉末700mg、CuO 250mg、デカリン5gの混合物を窒素雰囲気下170℃で31時間加熱、攪拌した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー（クロロホルムーヘキサン1:1）で精製し、115mgの正孔輸送機能分子（17）を得た。

【 0 0 4 4 】

【 化 2 4 】



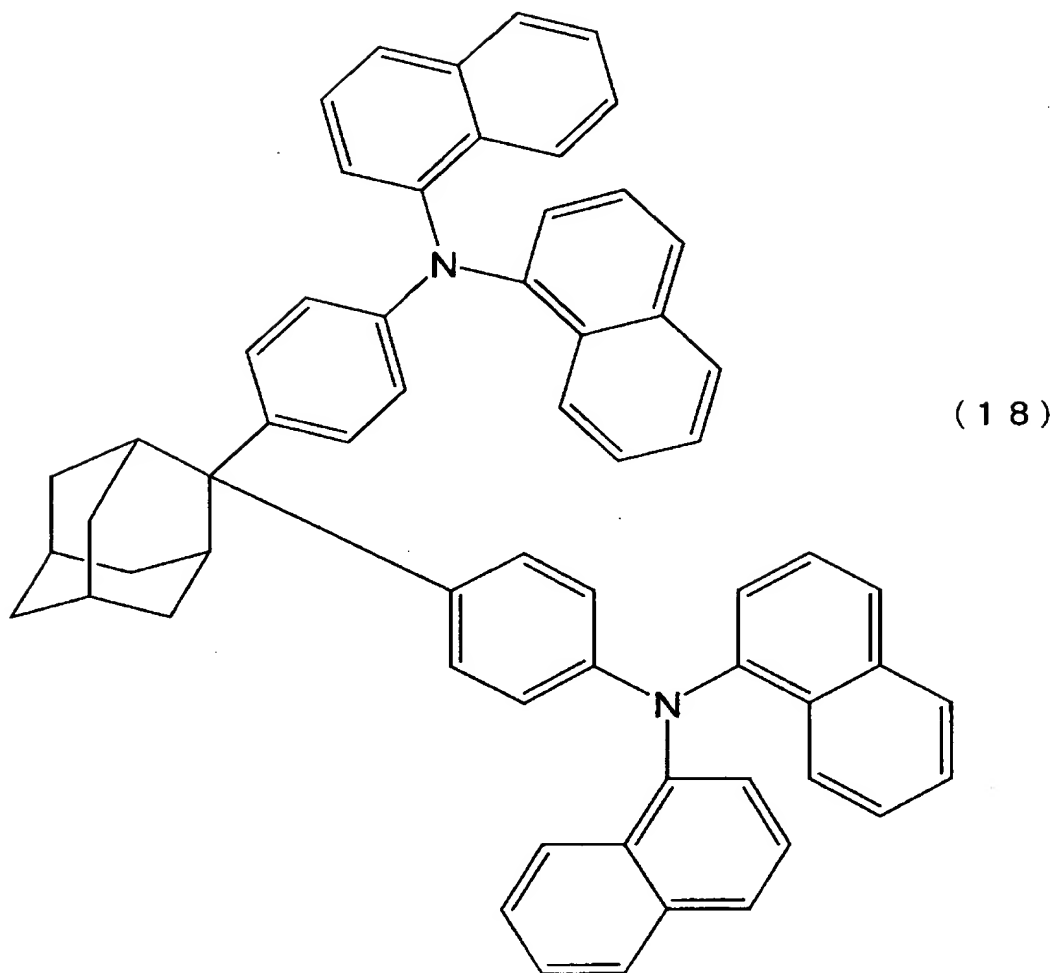
(1 7)

【 実施例 5 】 正孔輸送機能分子 (1 8) の合成

ジアニリノアダマンタン (化 1 0) 253mg、1-ヨードナフタレン1. 0g、炭酸カリウム1. 1g、銅粉末700mg、CuO 270mg、デカリン3. 5gの混合物を窒素雰囲気下170℃で30時間加熱、攪拌した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー (クロロホルム-ヘキサン1:1) で精製し、133mgの正孔輸送機能分子 (1 8) を得た。

【0045】

【化25】

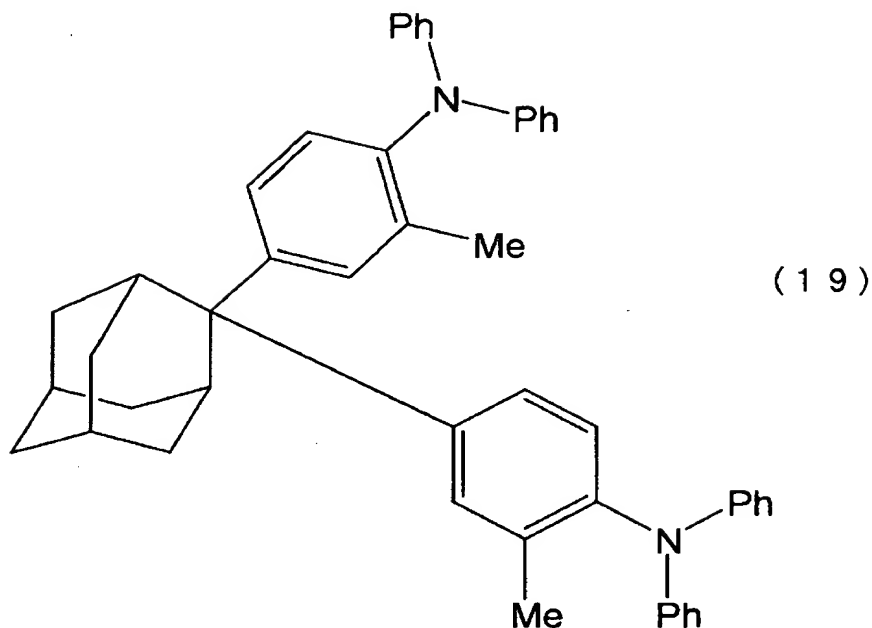


〔実施例6〕正孔輸送機能分子（19）の合成

上述したジトリイジノアダマンタン（15）250mg、ヨードベンゼン1.0g、炭酸カリウム1.1g、銅粉末700mg、CuO 250mg、デカリン5gの混合物を窒素雰囲気下170℃で35時間加熱、攪拌した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー（クロロホルム－ヘキサン1:1）で精製し、95mgの正孔輸送機能分子（19）を得た。

【0046】

【化26】



【実施例7】正孔輸送機能分子（8）の合成

上述したジジメチルアニリノアダマンタン（16）252mg、ヨードベンゼン1.0g、炭酸カリウム1.1g、銅粉末700mg、CuO 250mg、デカリン5gの混合物を窒素雰囲気下170℃で30時間加熱、攪拌した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー（クロロホルム－ヘキサン1:1）で精製し、75mgの正孔輸送機能分子（8）を得た。

【0047】

【実施例8】正孔輸送機能分子のガラス転移温度

DSC（示差熱分析）により測定した正孔輸送機能分子（17）、（18）、（19）、（8）のガラス転移温度は、110℃、135℃、150℃、165℃であった。

【0048】

【比較例1】正孔輸送機能分子のガラス転移温度

DSC（示差熱分析）により測定したTPDのガラス転移温度は、65℃であった。

【0049】

[実施例9]

上述した正孔輸送機能分子(17)を用いた電界発光素子を以下の工程により作製した。ガラス基板上にITO電極を形成し、ITO上に正孔輸送層としての正孔輸送機能分子(17)を60nmの厚さで真空蒸着した。この上に電子輸送機能分子Alq₃を60nm共蒸着した。最後にMg/Ag電極(9:1)を蒸着して電界発光素子を作製した。この素子を室温、窒素ガス雰囲気下で駆動させたところ、10mA/m²の電流を注入した時に、輝度150cd/cm²の緑色色発光が得られ、輝度半減寿命は1000時間であった。

【0050】

[実施例10]

上述した正孔輸送機能分子(17)を用いた電界発光素子を以下の工程により作製した。ガラス基板上にITO電極を形成し、ITO上に正孔輸送層としての正孔輸送機能分子(17)を60nmの厚さで真空蒸着した。この上に電子輸送機能分子Alq₃を60nm共蒸着した。最後にMg/Ag電極(9:1)を蒸着して電界発光素子を作製した。この素子を室温、窒素ガス雰囲気下で駆動させたところ、10mA/m²の電流を注入した時に、輝度150cd/cm²の緑色色発光が得られ、輝度半減寿命は1000時間であった。この素子を10mA/m²で駆動しながら温度を上げていったところ、110℃で素子の破壊が起った。

【0051】

[実施例11]

上述した正孔輸送機能分子(18)を用いた電界発光素子を以下の工程により作製した。ガラス基板上にITO電極を形成し、ITO上に正孔輸送層としての正孔輸送機能分子(18)を60nmの厚さで真空蒸着した。この上に電子輸送機能分子Alq₃を60nm共蒸着した。最後にMg/Ag電極(9:1)を蒸着して電界発光素子を作製した。この素子を室温、窒素ガス雰囲気下で駆動させたところ、10mA/m²の電流を注入した時に、輝度200cd/cm²の緑色色発光が得られ、輝度半減寿命は1500時間であった。この素子を10mA/m²で駆動しながら温度を上げていったところ、135℃で素子の破壊が起った。

【0052】

【実施例 1 2】

上述した正孔輸送機能分子（19）を用いた電界発光素子を以下の工程により作製した。ガラス基板上にITO電極を形成し、ITO上に正孔輸送層としての正孔輸送機能分子（19）を60nmの厚さで真空蒸着した。この上に電子輸送機能分子Alq₃を60nm共蒸着した。最後にMg/Ag電極（9：1）を蒸着して電界発光素子を作製した。この素子を室温、窒素ガス雰囲気下で駆動させたところ、10mA/m²の電流を注入した時に、輝度200cd/cm²の緑色色発光が得られ、輝度半減寿命は1800時間であった。この素子を10mA/m²で駆動しながら温度を上げていったところ、150℃で素子の破壊が起った。

【0053】

【実施例 1 3】

上述した正孔輸送機能分子（8）を用いた電界発光素子を以下の工程により作製した。ガラス基板上にITO電極を形成し、ITO上に正孔輸送層としての正孔輸送機能分子（8）を60nmの厚さで真空蒸着した。この上に電子輸送機能分子Alq₃を60nm共蒸着した。最後にMg/Ag電極（9：1）を蒸着して電界発光素子を作製した。この素子を室温、窒素ガス雰囲気下で駆動させたところ、10mA/m²の電流を注入した時に、輝度190cd/cm²の緑色色発光が得られ、輝度半減寿命は2200時間であった。この素子を10mA/m²で駆動しながら温度を上げていったところ、165℃で素子の破壊が起った。

【0054】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明によれば、正孔輸送性、発光性、電子輸送性の各機能性分子を縮合環化合物誘導体化あるいはアダマンタン誘導体化することにより、優れた電子特性を持ちながら、有機電界発光素子材料として好ましい低結晶性、高耐熱性を付与できる。

【図面の簡単な説明】

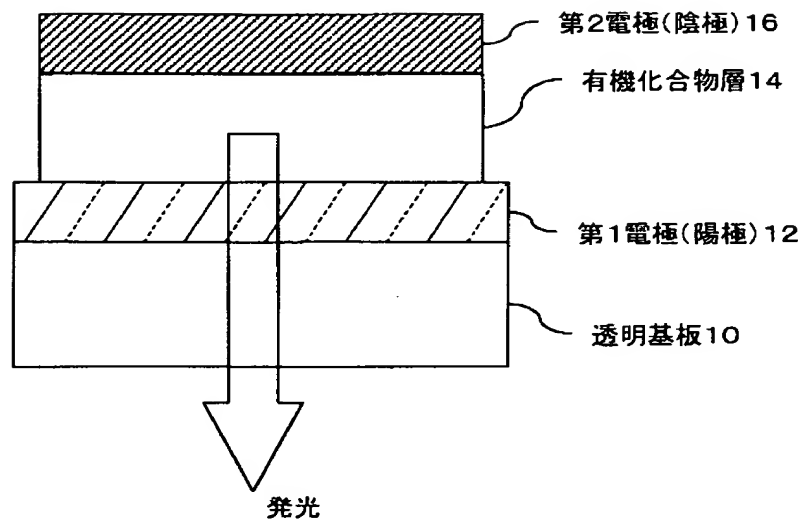
【図1】 本発明に係る電界発光素子の概略構造の断面図である。

【符号の説明】

1 0 透明基板、 1 2 第 1 電極、 1 4 有機化合物層、 1 6 第 2 電極。

【書類名】 図面

【図 1】



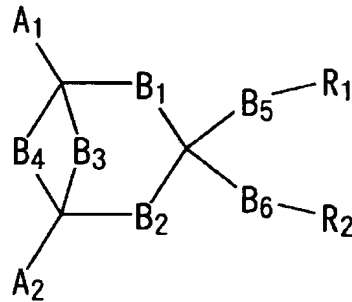
【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 高耐熱性、低結晶性が付与された正孔輸送性、発光性、電子輸送性の各機能性分子を使用した電界発光素子を提供する。

【解決手段】 第 1 電極 1 2 と第 2 電極 1 6 との間に一層または複数層の有機化合物層 1 4 を備え、この有機化合物層 1 4 のうち少なくとも一層は、下記化学式で示される縮合環化合物誘導体となっている。

【化 2 7】



ここで、A 1、A2は置換基、B1～B6は直接結合しているかまたは 2 官能性の置換基、R1、R2はトリフェニルアミン、クマリン、オキサジアゾール誘導体等の正孔輸送性、発光性、電子輸送性の各機能を有する機能単位。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003609]

1. 変更年月日 1990年 9月 6日

[変更理由] 新規登録

住 所 愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番地の1
氏 名 株式会社豊田中央研究所